

Patent number: JP2003123801
Publication date: 2003-04-25
Inventor: KOBAYASHI SUSUMU; HADO KAZUHITO; KUSAKABE HIROKI; OBARA HIDEO; HASE NOBUNORI; YAMAZAKI TATSUTO; TAKEGUCHI SHINSUKE
Applicant: MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD
Classification:
- international: H01M8/02; H01M8/10
- european:
Application number: JP20010318667 20011016
Priority number(s):

[View INPADOC patent family](#)

Abstract of JP2003123801

PROBLEM TO BE SOLVED: To prevent voltage drop caused by contact resistance on the cooling surface between separator plates in a polymer electrolyte stacked fuel cell.

SOLUTION: The polymer electrolyte stacked fuel cell has a conductive sheet gasket 30, preferably containing conductive carbon between contact faces of separator plates 10A, 20A equipped with channels 16, 26 of cooling water for constituting a cooling part.

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-123801

(P2003-123801A)

(43)公開日 平成15年4月25日 (2003.4.25)

(51)Int.Cl.
H 0 1 M 8/02

識別記号

F I
H 0 1 M 8/02

テ-マコード*(参考)
Y 5 H 0 2 6
S

8/10

8/10

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 7 頁)

(21)出願番号 特願2001-318667(P2001-318667)

(22)出願日 平成13年10月16日 (2001.10.16)

(71)出願人 000005821

松下電器産業株式会社
大阪府門真市大字門真1006番地

(72)発明者 小林 晋
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 羽藤 一仁
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74)代理人 100072431
弁理士 石井 和郎 (外1名)

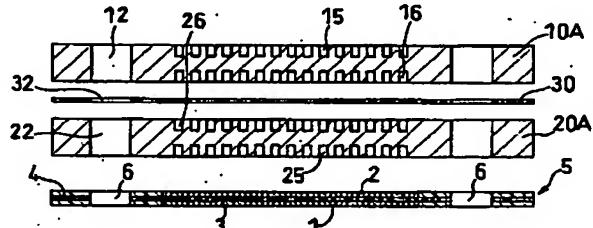
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 高分子電解質型積層燃料電池

(57)【要約】 (修正有)

【課題】 高分子電解質膜型積層燃料電池における、セパレータ板間の冷却水面での接触抵抗に由来する電圧低下を防止する。

【解決手段】 冷却部を構成するための、冷却水の流路16, 26を有するセパレータ板10A, 20A同士の接触面に、導電性のシートガスケット30、好ましくは導電性炭素を含むシートガスケットを介在させた高分子電解質膜型積層燃料電池。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 水素イオン伝導性高分子電解質膜、前記水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む一対の電極、前記電極の一方に燃料ガスを供給する流路を有するアノード側セパレータ板、前記電極の他方に酸化剤ガスを供給する流路を有するカソード側セパレータ板、および隣接するアノード側セパレータ板とカソード側セパレータ板の接触面に形成される冷却水の流路を含む冷却部を具備し、前記冷却部を構成するセパレータ板同士の間に導電性のシートガスケットを介在させたことを特徴とする高分子電解質型積層燃料電池。

【請求項2】 導電性シートガスケットが、導電性炭素を含むシートである請求項1記載の高分子電解質型積層燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、民生用コジェネレーションシステムや移動体用の発電器として有用な燃料電池、特に高分子電解質を用いた高分子電解質型積層燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】 高分子電解質膜を用いた燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを電気化学的に反応させることにより、電力と熱とを同時に発生させる。この燃料電池は、基本的には、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜、および高分子電解質膜の両面に形成された一対の電極、すなわちアノードとカソードから構成される。前記の電極は、通常、白金族金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とし、高分子電解質膜の表面に形成される触媒層、およびこの触媒層の外面に形成される、通気性と電子伝導性を併せ持つ、主に炭素繊維からなる拡散層からなる。電極に供給される燃料ガスおよび酸化剤ガスが外にリークしたり、二種類のガスが互いに混合したりしないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスケットが配置される。このガスケットは、拡散層、電極及び高分子電解質膜と熱接合により一体化してあらかじめ組み立てられることが多く、これをMEA(電解質膜-電極接合体)と呼ぶ。

【0003】MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電気的に直列に接続し、電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るために、ガス流路を有する導電性のセパレータ板が配置される。セパレータ板の材質としては、導電性と化学的安定性の観点から、カーボン板が用いられることが多い。その加工法は、一般にスライスされたカーボン板をフライス加工、プラスチック加工など機械的に加工することによる。近年はコストの観点から、若干量の樹脂を混合したカーボン粉を材料とし、プレス成形ないし射出成形等の成形技術によって、セパレータ板を製作

する検討が行われている。

【0004】燃料電池は、運転中に発熱するので、電池を良好な温度状態に維持するために、冷却水等で冷却する必要がある。そこで通常、1~3セル毎に、冷却水流路を設ける。これらのMEAとセパレータ板および冷却部を交互に重ねて10~200セル積層し、その積層体を集電板と絶縁板を介して端板で挟み、締結ボルトで両端から固定するのが一般的な積層電池の構造である。従って、この積層電池の一般的な形態は、図4のように、それぞれ背面に冷却水の流路を有するアノード側セパレータ板10およびカソード側セパレータ板20によりMEA5を挟んだ単位セルが積層された構成である。ここでは、各セル毎に冷却部を設けたが、複数セル毎に冷却部を持つ構造の積層電池では、一方の面がアノード側セパレータ板、他方の面がカソード側セパレータ板となる1枚のセパレータ板をMEAの間に挿入することになる。

【0005】セパレータ板の冷却水の流路を有する面においては、冷却水のセル外およびガスのマニホールド孔への漏洩、およびガスのセル外への漏洩を防ぐために、シール機構が必要である。一般的には、図2に示すように、セパレータ板にシール溝を設け、このシール溝にOリングを嵌めて積層するか、またはシール溝にシーラントあるいは液体ガスケットを充填して積層する等の方法によって、シールを行う。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 加工法に応じて、程度の問題はあるが、セパレータ板の表面は必ず表面粗さを持っている。これが積層電池におけるセル間の接触抵抗に影響し、これは積層電池の電圧損失に反映する。MEAの拡散層には、一般的に炭素繊維を織りないし抄紙したカーボンクロスないしカーボンペーパーが用いられる。これらはセパレータ板の表面粗さを吸収するのに充分な柔軟性を持っているため、セパレータ板/MEA間の接触抵抗は非常に低く、通常数mΩ/cm²以下である。しかしながら、図4に示した積層構造においては、冷却水の流路を有する面において、殆ど柔軟性のないセパレータ板同士が直接に接触することから、微視的に見ると、図6のような接触状態となっており、接触抵抗が例えば数十mΩ/cm²と大きいという問題があった。この問題は、表面粗さのほかに、厚みの不均一や反りなどを有する成形セパレータ板の場合に、より大きく顕在化する。

【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明は、冷却水の流路を有するセパレータ板同士の間に、導電性シートガスケットを挟んで積層することにより、上記の課題を解決する。すなわち、本発明は、水素イオン伝導性高分子電解質膜、前記水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む一対の電極、前記電極の一方に燃料ガスを供給する流路を有

するアノード側セパレータ板、前記電極の他方に酸化剤ガスを供給する流路を有するカソード側セパレータ板、および隣接するアノード側セパレータ板とカソード側セパレータ板の接触面に形成される冷却水の流路を含む冷却部を具備する高分子電解質型積層燃料電池において、前記冷却部を構成するセパレータ板同士の間に導電性のシートガスケットを介在させたことを特徴とする。導電性シートガスケットは、導電性炭素を含むシート、殊に黒鉛シートであることが好ましい。なかでも導電性および弹性に優れた膨張黒鉛シートが適する。

【0008】

【発明の実施の形態】本発明の高分子電解質型積層燃料電池を従来例と対比しながら説明する。アノード側セパレータ板10は、図7～9に示すように、一対の燃料ガス用マニホールド孔11、酸化剤用マニホールド孔12、および冷却水用マニホールド孔13を有し、アノードと対向する面には一対のマニホールド孔11を連絡する燃料ガスの流路15を有し、背面には一対の冷却水用マニホールド孔13を連絡する冷却水の流路16を有する。14はセルを締結するボルトをとおすための孔である。一方、カソード側セパレータ板20は、図11～12に示すように、一対の燃料ガス用マニホールド孔21、酸化剤用マニホールド孔22、および冷却水用マニホールド孔23を有し、カソードと対向する面には一対のマニホールド孔22を連絡する酸化剤ガスの流路25を有し、背面には一対の冷却水用マニホールド孔23を連絡する冷却水の流路26を有する。14はセルを締結するボルトをとおすための孔である。

【0009】MEA5は、図2に示すように、高分子電解質膜3、この膜を挟むアノード1およびカソード2、ならびに電解質膜の周縁部を被覆するガスケット4から構成される。このガスケットの部分には、上記のセパレータ板10および20と共通の燃料ガス用、酸化剤ガス用、および冷却水用の各マニホールド孔が設けられる。図では、酸化剤ガス用マニホールド孔6が示されている。このMEA5を上記のセパレータ板10および20で挟んで単位セルが構成される。このような単位セルを積層すると、両セパレータ板の冷却水の流路を有する面（以下水冷面という）同士の接合部は、図6に示すようになり、接触抵抗が大きくなる。

【0010】そこで、従来は、冷却水のセル外およびガスのマニホールド孔への漏洩、およびガスのセル外への漏洩を防ぐために、次のようなシール機構が設けられていた。セパレータ板10の水冷面には、図9に示すように、燃料ガス用マニホールド孔11および酸化剤ガス用マニホールド孔12をそれぞれ囲むシール溝17および18、ならびに冷却水用マニホールド孔13および冷却水の流路16を囲むシール溝19が設けられる。同様に、セパレータ板20の水冷面には、図12に示すように、燃料ガス用マニホールド孔21および酸化剤ガス用

マニホールド孔22をそれぞれ囲むシール溝27および28、ならびに冷却水用マニホールド孔23および冷却水の流路26を囲むシール溝29が設けられる。そして、セパレータ板10と20との水冷面が接触する部分には、燃料ガス用マニホールド孔および酸化剤ガス用マニホールド孔をそれぞれ囲むシール溝、ならびに冷却水用マニホールド孔および冷却水の流路を囲むシール溝には各々Oリングをはめる。図4および5では、酸化剤用マニホールド孔にはめるOリング38および冷却水の流れる部分を囲むシール溝にはめるOリング39が示されている。ここでは、両セパレータ板10および20にシール溝を設けたが、一方のセパレータ板にのみシール溝を設けることもある。

【0011】本発明は、上のようなシール溝およびOリングによるシール機構に代わり、より簡便に組み立てのできる燃料電池を提供するものである。すなわち、隣接するアノード側セパレータ板とカソード側セパレータ板の接触面に形成される冷却水の流路を含む冷却部を具備する積層燃料電池において、冷却部を構成するセパレータ板同士の間に導電性のシートガスケットを介在させる。ここに示す実施の形態においては、上で説明したシール溝17、18、19をなくしたほかはセパレータ板10と全く同じアノード側セパレータ板10A、およびシール溝27、28、29をなくしたほかはセパレータ板20と全く同じカソード側セパレータ板20Aを用いる。そして、セパレータ板10と20の水冷面には、導電性のシートガスケット30を介在させる。このガスケット30には、セパレータ板10Aおよび20Aと共に一対の燃料ガス用マニホールド孔、酸化剤用マニホールド孔、および冷却水用マニホールド孔を設ける。図1および2においては、酸化剤用マニホールド孔32が示されている。

【0012】上記のセパレータ板10Aおよび20AによりMEA5を挟んで単位セルが構成される。単位セル間にはセパレータ板10Aと20Aの水冷面の間に挟まれるシートガスケットが挿入される。このようにして組み立てられた積層電池が図1に示されている。MEA5には、セパレータ板10Aおよび20Aと共に一対の燃料ガス用マニホールド孔、酸化剤用マニホールド孔、および冷却水用マニホールド孔を有する。図1および2においては、酸化剤用マニホールド孔6が示されている。ここでは、各セル毎に冷却部を設けたが、複数セル毎に冷却部を持つ構造の積層電池では、一方の面がアノード側セパレータ板、他方の面がカソード側セパレータ板となる1枚のセパレータ板をMEAの間に挿入することになる。

【0013】

【実施例】以下、本発明の実施例を説明する。

《実施例1》

セパレータ板X：大きさ120×120mm、厚み4m

mの両面研磨グラッシャーカーボン板（東海カーボン（株）製）を用いて、フライス加工により、実施の形態で説明した構造のアノード側セパレータ板10およびカソード側セパレータ板20を製作した。セパレータ板10のガス流路15は、幅2mm、深さ0.4の溝を、ピッチ4mmで3本並行させて設けた。セパレータ板20のガス流路25は、幅2mm、深さ0.6の溝を、ピッチ4mmで5本並行させて設けた。冷却水の流路16および26は、幅2mm、深さ0.4mmの溝をピッチ4mmで3本並行させて設けた。また、シール溝17～19、および27～29は、幅2mm、深さ0.2mmとした。セパレータ板の平均表面粗さは5.2μmであった。

【0014】セパレータ板Y：セパレータ板Xの水冷面全面に、サンドブラスト処理を行って、平均表面粗さを1.9.3μmまで上げた。上記セパレータ板の水冷面における接触面積（マニホールド孔、ボルト孔、流路部を除いた面積）はおよそ100cm²である。

【0015】上記2種類のセパレータ板について、以下の2種類の実験区で、抵抗測定実験を行った。

（実験区A）セパレータ板の水冷面のシール溝にシリコーン系シーラント（信越化学（株）製）を充填してアノード側セパレータ板とカソード側セパレータ板の水冷面同士を貼り合わせ、1MPaの応力下で全抵抗を測定する。

（実験区B）セパレータ板の水冷面に黒鉛シートガスケット（日本カーボン（株）製 ニカファイルム 0.2mm厚）を挟み、1MPaの応力下で全抵抗を測定する。

【0016】上記セパレータ板の接触面積（マニホールド、ボルト孔、流路部を除いた面積）を勘案して、1cm²あたりの抵抗値に換算し、以下の結果を得た。

【0017】

【表1】

	抵抗値 (mΩ / cm ²)	
セパレータ板	X	Y
実験区A	11.5	54.2
実験区B	3.6	3.8

【0018】セパレータ板Xとセパレータ板Yは、同一の材料からできており、同一のバルク抵抗を持っていることから、上記各々の実験区におけるセパレータ板Xとセパレータ板Yとの差異は、水冷面における接触抵抗の差異である。上記の実験結果から明らかのように、本発明の構成においては、充分に表面が平滑な場合においても効果があるが、特に表面粗さの大きい場合の接触抵抗の低減に有効である。これは安価な成形セパレータ板を用いる場合、非常に有利である。

【0019】《実施例2》次に、以下の手順により実際に電池を組み、後述する運転条件で運転を行い、その電

池電圧を測定する試験を行った。

【0020】MEA作成法：比表面積800m²/g、DBP吸油量360ml/100gのケッテンブラックEC（ケッテンブラック・インターナショナル社製ファーネスブラック）に、白金を重量比1:1の割合で担持させた。この触媒粉末10gに、水35gおよび水素イオン伝導性高分子電解質のアルコール分散液（旭硝子（株）製、9%FSS）59gを混合し、超音波攪拌機を用いて分散させて、触媒層インクを作製した。この触媒インクを、ポリプロピレンフィルム（東レ（株）のトレファン50-2500）に塗工し、乾燥して触媒層を形成した。得られた触媒層を大きさ58×58mmに切断し、高分子電解質膜（DuPont社のNaphilon 117、50μm厚）の両面に、温度135°C、圧力32kgf/cm²の条件で転写して、両面に厚み10μmの触媒層を形成した。

【0021】続いて、炭素繊維からなるガス拡散層基材（東レ（株）のTGPH120）の一方の面に、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）微粉末（ダイキン工業（株）製）とアセチレンブラック（電気化学工業（株）製）が重量比1:4の比率となるような水分散液を塗布し、390°Cで20分間焼成して、厚み40μmの撓水層を形成し、これを大きさ59×59mmに型抜きした。次いで、エチレン-プロピレン-ジエン三元共重合体配合物（EPDM）/ポリエチレンテレフタレート（PET）/シリコーンの三層構造を持つ厚み320μmの面状ガスケット材を打ちぬいて、マニホールド孔、ボルト孔、電極露出面（60×60mm）を有する2枚のMEAガスケットを作成した。上記の触媒層露出面に、前記の撓水層を形成した撓水性電極を、その撓水層が触媒層に接するように位置決めし、さらにその周囲にMEAガスケットを、EPDM面が高分子電解質膜に接するように位置決めした。次いで、これらを一括してホットプレス接合（130°C、1.5MPa）をしてMEAを形成した。

【0022】上記MEAおよび上記セパレータ板を用いて、前記実験区Aおよび実験区Bの二種類の締結様式で、締結荷重600kgfで締結し、40セル積層電池を組み縫、電池電圧を測定した。運転条件は次のとおりである。セル温度は75°C、燃料ガスは露点70°Cに加湿された純水素、酸化剤ガスは露点70°Cに加湿された空気、燃料利用率80%、空気利用率40%、電流密度0.7A/cm²であった。

【0023】

【表2】

	4セル合計電圧 (V)	
セパレータ板	X	Y
実験区A	26.3	25.0
実験区B	26.5	26.5

【0024】上記の結果から明らかなように、本発明によれば、セパレータ板の表面粗さが粗い場合にも、水冷面における電圧降下が見られず、安定した電気的接続を保つことが可能であった。

【0025】

【発明の効果】本発明によれば、セパレータ板の水冷面における接触抵抗による電圧降下を抑制し、高性能の高分子電解質型積層燃料電池を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例における高分子電解質型積層燃料電池の要部の縦断面図である。

【図2】その組立過程の要部断面図である。

【図3】セパレータ板の水冷面同士の接合部の拡大断面図である。

【図4】従来の積層電池の要部の縦断面図である。

【図5】その組立過程の要部断面図である。

【図6】セパレータ板の水冷面同士の接合部の拡大断面図である。

【図7】アノード側セパレータ板の正面図である。

【図8】図7のVIII-VIII'線断面図である。

【図9】同セパレータ板の背面図である。

【図10】カソード側セパレータ板の正面図である。

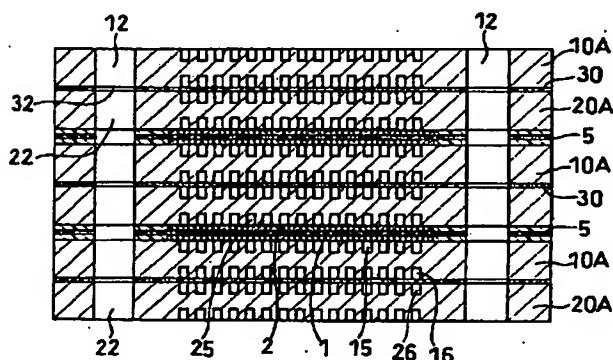
【図11】図10のXI-XI'線断面図である。

【図12】同セパレータ板の背面図である。

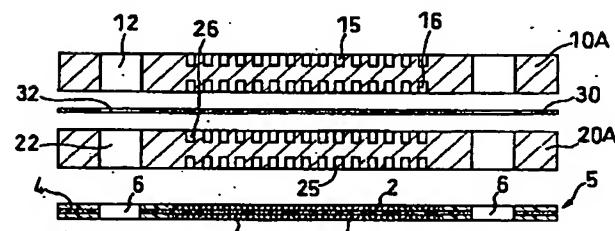
【符号の説明】

- 1 アノード
- 2 カソード
- 3 高分子電解質膜
- 4 ガスケット
- 5 MEA
- 10 アノード側セパレータ板
- 15 燃料ガスの流路
- 16、26 冷却水の流路
- 20 カソード側セパレータ板
- 25 酸化剤ガスの流路
- 30 シートガスケット

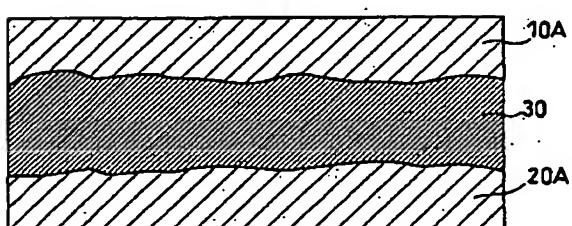
【図1】



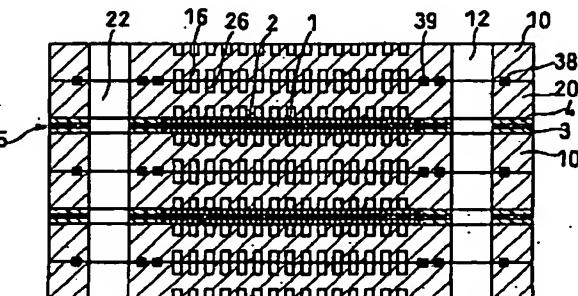
【図2】



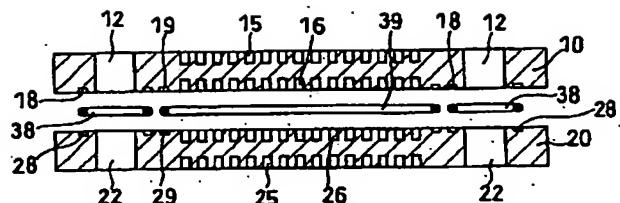
【図3】



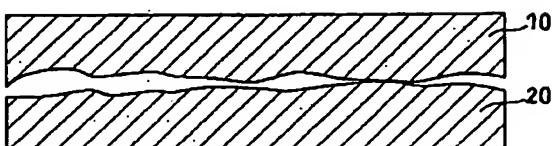
【図4】



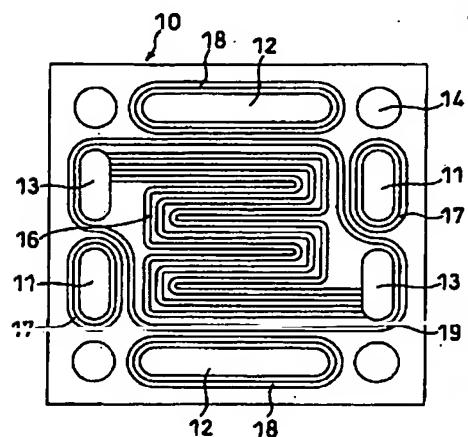
【図5】



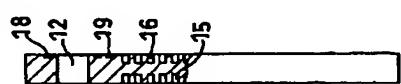
【図6】



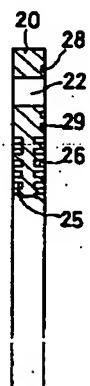
【図7】



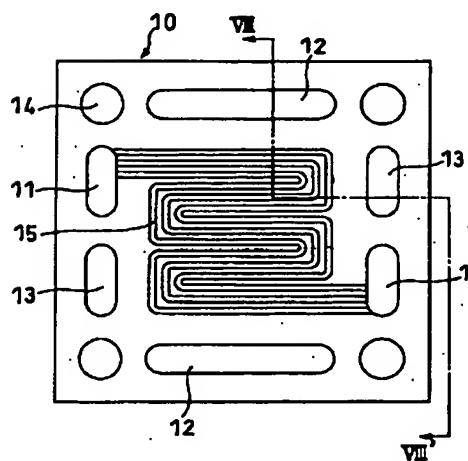
【図8】



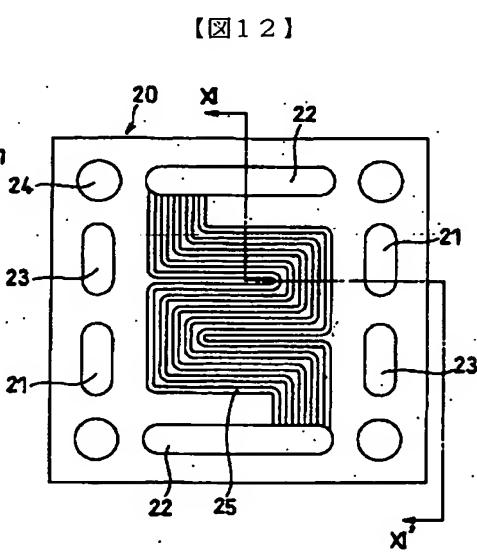
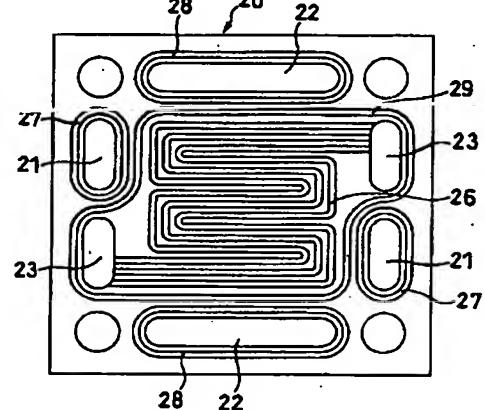
【図11】



【図9】



【図10】



フロントページの続き

(72)発明者 日下部 弘樹
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内
(72)発明者 小原 英夫
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 長谷 伸啓
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内
(72)発明者 山崎 達人
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内
(72)発明者 竹口 伸介
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

F ターム(参考) 5H026 AA06 CC03 CC08 CX05 EE05